

PAT-NO: JP402155170A
DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 02155170 A
TITLE: FUEL CELL PERFORMING INTERNAL REFORMATION
PUBN-DATE: June 14, 1990

INVENTOR-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
FUJIMURA, HIDEKAZU	
ITO, SHOJI	
KOBAYASHI, SHIGEYOSHI	

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
HITACHI LTD N/A	

APPL-NO: JP63308745
APPL-DATE: December 8, 1988

INT-CL (IPC): H01M008/02 , H01M008/06

ABSTRACT:

PURPOSE: To make a fuel cell compact and to prevent deterioration in the activity of a reforming catalyst caused by an electrolyte by forming passages having different inlets and outlets and passing different fluids.

CONSTITUTION: Corrugated members 1a, 1b perpendicularly intersect though a separating plate 2 to form four passages 3a-3d. Of two kinds of passages 3a-3d formed between the gas separating plate 2 and electrodes, the passages 3a, 3d reform supplied fuel gas, and have different inlets and outlets from the passages 3b, 3c opened toward electrodes in communication with an electrolyte. Penetration of electrolyte vapor from the passages 3b, 3c to the passages 3a, 3d can be prevented. Catalysts in the passages 3a, 3d separated from electrodes can be prevented from deterioration in activity for a long time.

COPYRIGHT: (C)1990,JPO&Japio

⑥ 公開特許公報(A) 平2-155170

⑦ Int. Cl.⁸

H 01 M 8/02

8/06

識別記号

R

C

R

庁内整理番号

7623-5H

7623-5H

7623-5H

⑧ 公開 平成2年(1990)6月14日

審査請求 未請求 請求項の数 10 (全11頁)

⑨ 発明の名称 内部改質を行う燃料電池

⑩ 特 願 昭63-308745

⑪ 出 願 昭63(1988)12月8日

⑫ 発 明 者 藤 村 秀 和 茨城県土浦市神立町502番地 株式会社日立製作所機械研究所内

⑬ 発 明 者 伊 藤 昌 治 茨城県土浦市神立町502番地 株式会社日立製作所機械研究所内

⑭ 発 明 者 小 林 成 嘉 茨城県土浦市神立町502番地 株式会社日立製作所機械研究所内

⑮ 出 願 人 株式会社日立製作所 東京都千代田区神田駿河台4丁目6番地

⑯ 代 理 人 弁理士 平木 祐輔 外1名

明 細 書

1. 発明の名称

内部改質を行う燃料電池

2. 特許請求の範囲

1. 電極、電解質、ガス流路を含む燃料電池において、ガス分離板をはさんで両側に該ガス分離板と対峙するそれぞれの電極を配設し、該電極とガス分離板との間に、該電極と接し、該電極において電気化学反応を生じる第1の流体流路を前記分離板の両側にそれぞれ配設し、該電極と隔離され、しかも該電極の燃発生面と熱的に連絡している第2の流体流路を該ガス分離板の両側にそれぞれ配設し、該第1の流体流路と該第2の流体流路が隔壁を介して相互に接し、かつ該第1の流体流路と該第2の流体流路へのガスの導入部が異なることを特徴とする燃料電池。
2. 第2の流体流路の両端出入口部が、隣接する第1の流体流路の両端の出入口部と連絡できないように閉塞されていることを特徴とする請求項1記載の燃料電池。

3. ガス分離板と該シート材によって形成される分離板に対して開いている第2の流体流路の閉塞された両端部近傍のガス分離板上に、貫通する開口部を設け、該開口部と流体的に連絡する第2の流体流路の出入口部を、該ガス分離板介して該流体流路と反対側に設けた請求項2記載の燃料電池。

4. 電池内にガスの給排を行うガスマニホールドと第2の流体流路の出入口部を含み、流体的に該第2の流体流路とのみ開口部を通して連絡する通路あるいはガスヘッダーを該第2の流体流路の反対側の該分離板上に設けられたことを特徴とする請求項3記載の燃料電池。

5. 電解質、ガス拡散電極により電気化学反応を行わせるために該拡散電極には、電気化学的に活性なガスを流し、該電極と流体的に隔離され、燃発生面とは熱的に連絡されている流路に電気化学的に不活性なあるいは、該電極を流れるガスとは異なるガスを流し、そのガスの供給源を別個に有する燃料電池システム。

6. 電極と流体的に隔離された通路に、電池の保溫、昇温、冷却操作において電池の温度を制御するための加熱媒体あるいは冷却媒体を電池に反応ガスとは独立して供給する請求項5記載の燃料電池システム。
7. 燃料電池内の電解質と該電解質と電極を介して流体的に連絡する該電池の流体通路へ、ガス供給源から供給される炭化水素含有ガスを導入して電気化学反応を生じさせ電気エネルギーを発生する燃料電池において、該電極と隔壁を介して位置し、かつ電極の熱発生面と熱的に連絡している第2の流体通路を設け、該電極と連絡する第1の流体通路へ供給するガスと、電極と隔離されている前記第2の流体通路へ供給するガスが、異なる位置から別々に混合されることなく導入されることを特徴とする燃料電池の運転操作方法。
8. ガス分離板を介して両側に位置する第2の流体通路のうちの片方あるいは両方に炭化水素を含有するガスを流し、該ガスを熱媒を用い電気

化学的に活性なガスに改質する吸熱リフォーミング過程を導入したことを特徴とする請求項7記載の燃料電池の運転操作方法。

9. ガス供給源から供給される炭化水素を含有するガスを最初に第2の流体通路に連通改質させながら該流体通路の出口に達せしめ、その後該改質ガスを該改質ガスと電気化学反応を生じる電極側に位置する第1の流体通路入口に達せしめることを特徴とする請求項8記載の燃料電池の運転操作方法。
10. 炭化水素含有ガスが流れる第2の流体通路と改質されたガスが流れる第1の流体通路を流れるガスとの向きを互いに対向するようにしたこととを特徴とする請求項9記載の燃料電池の運転操作方法。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、反応生成ガスまたは、反応生成ガスを電池に導入、排出される燃料電池に関わり、特に、燃料電池供給ガス用炭化水素分をその内部で改質

することができる燃料電池、該燃料電池システム、および該燃料電池の運転操作方法に関する。

(従来の技術)

リン酸電池および溶媒膜燃料電池のような燃料電池において、燃料供給ガスの炭化水素分を内部で改質することは既知である。このような炭化水素分は通常、比較的電気化学的に不活性なメタンを含有しているが、改質されることにより、電気化学的に活性で燃料電池の反応に寄与する水素、一酸化炭素を生成する。燃料電池内での改質は、改質反応が吸熱反応であるため、運転中に電池内で発生する熱を利用してある点で有利である。すなわち、内部改質によって、燃料電池の冷却システムの負荷を軽減することができるからである。

特開55-12700号公報には、燃料電池の熱制御に炭化水素の改質反応の使用が記載されている。電池中の電解質から隔離された通路内に改質触媒を配置させることにより、電解質の蒸気による触媒劣化を防止させるとともに、改質反応とプロセスガスの加熱を同時に利用した熱制御を行うもの

である。

(発明が解決しようとする課題)

上記従来技術は、電解質から隔離された炭化水素の改質のみを行う第1の通路と、それと並置されたいわゆる従来から存在する電極へガスを供給する第2の通路のそれぞれの入口には共通のガスが供給される電池構造となっている。すなわち第1の通路と第2の通路のガス供給源が共通している。このため、燃料供給ガス中に含まれる炭化水素分は、第1の通路を通った場合のみ改質されて排出されるが、電気化学反応には寄与しない。第2の通路に入ったガスの炭化水素分は改質されないため、電気化学反応に寄与する水素などのガスの分圧は極めて低くなり、性能が低くなる点についての考慮がなされていない。このため電池から排出された第1の通路と第2の通路のガスを混合して再循環させる方式をとらざるを得なくなり、システム上、大きな制約を受けるとともに再循環系に対して補助動力源が付けられることになりシステムの効率を考えた場合好ましくない。また、

たとえ再循環方式をとっても、電池入口では常に新しい酸化水素を含む燃料供給ガスと溫和されているため、その分だけ水素などの電気化学反応に寄与する反応種の分圧低下による電池性能の低下は避けられない。

また前記公報には電池を直列にして使用する際のカスケード方式が記載されているが、これは先行電池中の酸化水素改質ガスを後続電池の反応通路に供給して電気化学反応を起こす方法であるが、先行電池と後続電池とでは、ガス流量、ガス組成、ガス温度などの条件を等しくすることは困難であり、各電池間で性能差や電池温度差が発生することは避けられない。

すなわち従来技術では、単電池ごとに燃料供給ガスを改質し、その改質ガスを用いて発電する方法あるいは構造にはなっておらず、電気化学反応に寄与する改質ガスは、再循環によって得るか、あるいは先行電池から得る以外になく、それに伴う欠点は前述の通りである。

さらに上記従来技術においては、コンパクト性

及び熱制御面から電解質から隔離された通路と反応通路とが隣接して交互に並べられるが、それぞれの通路の両端部は開口されており、電解質から隔離された通路とはいえ、反応通路内の電解質蒸気が拡散により、隣り合う両通路の端部の開口部を通して流入することは避けられない。従って電解質から隔離された通路内に配置された改質触媒が隣接する通路からの電解質により劣化し、寿命を考えた場合、問題が生ずる。

本発明の目的は、コンパクトで、電解質による改質触媒の劣化を防止し、単電池内で、供給燃料ガスの改質とその改質ガスを用いて電気化学反応による発電を行う燃料電池を提供することにある。

本発明のもう1つの目的は、改質反応の吸熱作用とプロセスガスの加熱を利用し、高性能な熱制御や温度分布均一化を行うことである。

〔課題を解決するための手段〕

上記目的は、アノードガス、カソードガスを仕切るガス分離板をはさんで、それぞれの電極との

間に形成されるガス通路を形成する空間部において、従来の同様の電極と流体的に連絡して電気化学反応を行う通路とそれとは別に、電極と流体的に隔離された通路を形成させ、その隔離された通路内に原料であるメタンの改質を行う改質触媒を配置するとともにその通路の出入口が、電極と直接接する通路と流体的に隔離された位置に設け、また、該通路にガスを通るためのマニホールドも、他のガスと直列しないように独立して設けることにより達成される。さらに、電極と隔離された通路内で改質されたガスだけが電極と直接接する通路に導入されることにより達成される。

出入口を異にする流体的に隔離された通路を形成するため、発電のために必要不可欠な分離板と電極との接合を図るために分離板と電極間に挿入られる形状、あるいは凹凸シート板の表面を利用し、分離板とシート材によって形成される、電極と直接接しない通路の両端部を閉塞させ、もう一方の電極とシート材によって形成される通路の両端部に設けられる出入口部と流体的な連絡を

遮断することによって達成される。さらに、両端を閉塞された、電極と隔離された通路の出入口部を、分離板をはさんで、反対側に設けるとともに、通路両端近傍の分離板に貫通孔を設け、この開口部を通じて、分離板の反対側から通路へのガスの供給や、ガスの排気を行うものである。従って、各セルへガスを供給するためのマニホールドと上記出入口部とを連絡する通路が、分離板上に形成され、マニホールドから供給されるガスはその通路を遡って入口部に入り、そこから分離板に空けられた開口部を通して分離板の反対側に位置する電極と隔離され、両端を閉塞された通路に導入される。通路からの排気も同様に関口部を通じて出口部に導入され、出口マニホールドに連絡することによって行われる。また、出入口部として、分離板をはさんで反対側に位置するもう一方の両端が閉塞され、電極と隔離された通路のうち、最も外側に位置する2つの両端側の通路をそれぞれマニホールドと、分離板に設けた開口部を連絡する出入口部とすることにより達成される。

また、電池の温度分布の均一化を図るためには冷却用ガスを1方向からではなく、複数の方向からの分散供給や、電池内の高熱部に吸熱反応である改質反応を集中的に行わせるようなガス流れを実現することにより達成される。具体的には、上記の波路構造により、カソード、アノードガスまたはそれ以外の2種類のガスを、同一面に最大2種類までの流体を、4辺の任意の辺から流すことが可能であることを考えれば、上記の様なガス流れを実現することは十分に可能である。

また、電池の効率的な熱制御を行うためには、電気ヒーター以外からのガスによる加熱手段あるいは保温方法を有効に用いることが望ましい。そのためには、発電プラント内で生成される、種々の種類されていないダーティーなガスでも利用できるだけではなく、電極などを阻害しない伝熱を行う通路を設けることにより達成される。

(作用)

ガス分離板と電極との間に形成される2種類の通路のうち、電極と隔離された通路は、その中で

とができる。

さらに1つの形式として、上記の電極と隔離された通路には、反応通路とも流体的に隔離されているため、冷却以外に電池の保型、昇温といった熱制御においても、反応ガスと全く関係のない熱媒体や電極を劣化させるような熱媒体を流しても何ら問題は生じないで、システムを考えた場合、ヒーターによる温度制御に代わるより効率の良い熱の運用方法が得られる。

(実施例)

以下、本発明を実施例により詳細に説明する。
実施例1

本発明の一実施例を第1図～第2図により説明する。

本発明の波路構造の基本構成を第1図に示す。互いに直交する波形状部材1a、1bに分離板2が介在し、上記波形状部材と密着させることにより、3a、3b、3c、3dと4つの流路が構成されることになる。本発明では、そのうちの分離板2と上記波形状部材1a、1bにより囲まれた流路3a、3dの

供給燃料ガスを改質するが、電解質と通じる電極側に開いた通路とは出入口が別なため、電解質と通じる通路からの電解質の裏への侵入が防がれ、その結果、電極と隔離された通路内の触媒は、長時間にわたり活性を低下させることがない。

また、本発明によれば、分離板をはきんで位置するもう1つの電極と隔離された独立な通路が存在するが、その通路も前述した改質用通路とすることにより2つの異なる方向から供給ガスを導入できるため、一方向のみより、さらに効率良く電池の冷却が行える。すなわち従来に比べて分散してガスを電池内に導入できるので、入口部での急激な吸熱反応が緩和され、案内全体での発熱量と吸熱量のバランスを案内温度分布が均一になるように制御することがより容易に行えることになる。

場合によっては、改質通路の代わりに改質ガス側とは反対極側のプロセスガスを流すことによりやはり異なる2つの方向からのプロセスガス導入が可能となり一方向のみの流れよりも電池内の温度分布均一の面からより効率の良い冷却を行うこ

波路の両端部のすべての開口部100のみが閉塞されている。従って、例えば200の方向から入ってくる流体は流路3bのみを、201の方向から入ってくる流体は流路3cのみを流れることになる。次に上記の両端を閉塞された流路3dの入口部は、分離板2を隔てた、上記流路3aのうちの端部の流路4aの両側101aを開口し、さらに分離板2に、流路3dに通じる貫通穴102を設けることにより達成される。すなわち、例えば202の方向から流入する流体は、開口部101aで流入し、次に上記貫通穴102を通過して流路3dを流れることになる。同様に、もう1つの両端を閉塞された流路3aに開いても、流路3dの端部の流路4bに開口部101bを設け、さらに分離板に流路3aと通ずる貫通穴を設けることにより、例えば流体203の入口部を形成できる。また、それぞれの出口部についても残りのそれぞれのらう1方の端部側を先と同様の構造とすればよい。

なお流体の入口、出口部における流体201と202あるいは流体200と203との混合は、分離板2に

より完全に防止される。

第2図及び第3図は、第1図を補足するための断面図であるが、第1図における一組の流路構成体を複数個積層するため、新たに必要となるマニホールドを含めた構成となっている。

第2図は上記流体202の流れを示すもので、流体202のみが通る入口マニホールド5aを流れる流体202の分離板2の下側に位置する流路3c, 3dへは、マニホールド部材7により流入が妨げられる。流体202は上記分離板2の上側に位置する上記マニホールド部材7の開口部8を通して、上記端部流路4aの開口部101aに流入し、上記貫通孔102を通り、上記両端を閉塞された流路3dを流れ、貫通孔102を通り端部流路4aから出口マニホールド5bに導かれる。

第3図は同様に流体201の流れを示すものである。流体201は流体201のみが流れる入口マニホールド6aを流れ、分離板2の下側の上記マニホールド部材7の開口部8を通り、流路3cを流れ、出口マニホールド5bに導かれる。この場合も、

により形成される流路の両端部100は全て閉塞されている。また、上記セパレート板2には、周縁4辺に5a～5pまで16個のマニホールド用の貫通穴が望けられている。また、その内側に多数の小孔102がやはり4辺に設けられている。次にマニホールドを構成するカソード側板7a、アノード側板7bが上記セパレート板2と接合される。その際、セパレート板2に設けたマニホールド用貫通穴5と枠7a, 7bに設けたマニホールド用貫通穴5とは一致する。枠7a, 7bのマニホールド用貫通穴5は、各辺において1つおきに内向きに開口部8が設けられている。しかもセパレート板上に両枠が接合されたときに、枠7a, 7bではどちらか一方のみ開口部8が配置されるようになっており、この開口部を通じてのみ、流路3とマニホールド間の連絡が可能となる。

第5図に、上記流路部構成要素と電極9a, 9bを上下両側に備えた電解質板10とが交互に積層された、複数個の電池を積層した積層電池の断面図を示す。なお、この積層電池の上下には、外

マニホールド6a, 6bに面したもう一方の流路4aとはマニホールド部材7によりその流入が防止されている。

以上、本発明により、分離板をはさんで互いに直交する形で設けられた流路形状の流路構成体及びその積層体において、その大きさや外観上の形状を殆ど変えることなく、最もコンパクトな形で、最大4種類の流体を、また、同一辺には最大2種類までの流体を4辺の任意の辺からそれぞれ独立して流すことができる。

実施例2

次に本発明の流路構成体を用いた具体的な装置についての実施例として内部改質を伴う増進炭酸塩型燃料電池を例に説明する。

第4図は、本発明による増進炭酸塩型燃料電池の流路部構成要素を示すものである。アノードガス204とカソードガス205を分離し混合を助けるセパレート板2にカソード側流路を形成する流路1a、アノード側流路を形成する流路1bが密着して接する。その際、上記流路1a, 1bとセパレート板

部から電池内にガスを供給したり、あるいは劣部へ排ガスとして排出するためのガスヘッダ部11, 12が備わっている。

説明の都合上、流路構成体Aは、第4図のマニホールド5f(5b)～5h(5p)間の切断面とし、同じくBは5g(5e)～5n(5p)間の断面図を示すものとする。

流路構成体A側に示すように、アノードガス204は、アノードガス供給口19から、アノード入口ヘッダ14に入り、その後、該ヘッダと連絡している入口マニホールド5f, 5h内を流れ、入口側の開口部8を通して、電極9bと接する第1の流体流路である流路3bを流れる。電極9b内で電気化学反応を行い、出口側開口部8を通り、排ガス207となって、出口マニホールド5g, 5nを通り、アノード出口ヘッダ13に集められた後にアノード排気口17を通して系外に排出される。

同様に、カソードガス205に関しては、図には示されていないが、ガスヘッダ部11あるいは12に位置するカソード入口ヘッダから第4図のA

口マニホールド5b, 5d を通って、アノードガスと直角方向の第1の流体通路である流路3cを流れ、電極9a内ではカソード電極反応を生じ、出口開口部8を通して、出口マニホールド5k, 5l を通って、図には示されていないが、やはりガスヘッダー部11, 12に設けられているカソード出口ヘッダーに集められ、系外へ排出される。

従来の電池の場合、流形シート材1によってアノード、カソード側それぞれに形成される、もう1つの流路3a, 3d については、それぞれ隣り合う流路3b, 3cを流れるガスと同一のガスを流す物であった。本発明の電池では、例えば第2の流体通路である流路3a について言えば入口マニホールド5a, 5g、出口マニホールド5a, 5p は他のマニホールドと独立しており、また、該マニホールドと連絡する出入口ヘッダー16, 15も独立して設けられている。さらに、流路3aの電極9bとも流形シート材1により隔離されている。従って、特に電気化学反応に関係なく、ガス206を独立に流すことができる。これはカソード側の第2

の流体通路である流路3dについても同様である。

本実施例では、電池本体内で原燃料であるメタンを改質して電気化学反応を生じさせる、いわゆる内部改質型燃料電池に適用している。第8図に本実施例の電池本体の断面図を示す。改質前のメタンを含む原燃料ガス208は、ガス供給口18からアノード入口ヘッダー16に集められ、ここから、複数の入口マニホールド5b を通って、各セルへ分配されることになる。すなわち入口マニホールド5b から、マニホールド部に設けた開口部8を通り、セパレータ板2に設けられた開口部102を通って流路3aに導入される。流路3a内には、改質触媒30が配置され、流路3a内で水素リッチなガスに改質され、開口部102、開口部8を通り出口マニホールド5jへ導かれる。流路3aは他の流路及び電極9a, 9bと隔離されているために、電解質板10から電極9a, 9bを通して流路内3b, 3cに発生する電解質蒸気の流路3aへの侵入が防止でき、改質触媒は電解質蒸気の凝結による付着によって生じる活性低下をまめられることができ、

電池の長寿命化が図れることになる。なお改質後のガス204は、出口マニホールド5bを通り、一旦、ガスヘッダー15に入り、さらに、ガスヘッダー15と流体的に連絡している別のマニホールド5Aを通して、今度は、流路3aと隣合う流路3bに開口部8を通して導入される。流路3bは電極9bと接しており、電気化学反応を生じながら、隣接する改質反応を行う流路3a内のガス流れとは逆方向に進む。流路3bの出口に通したガスは、開口部8を通して出口マニホールド5Aを通り、出口アノードヘッダー14に集められ、排気口17を通り排気ガス207となって電池から排出される。なお、流路3bには流路3aを出た改質ガスのメタン改質率をさらに高めるために、従来と同様に改質触媒30を配置してもよい。

また、本実施例では、改質反応を生じる流路3aと電気化学反応を生じる流路3bのガス流れが互いに逆方向となっている。これにより従来に比べて、電池内面の温度分布をより均一にすることが可能となる。その効果を第7図を用いて説明

する。第7図には本実施例と従来例におけるアノードガス流れ方向の温度分布を示す。従来例では原燃料及び改質ガスの流れ方向が同じである。一般にガス入口温度はガスの燃熱を利用して電池を冷却するため、電池温度よりも低い。このため、ガスの入口部付近の電池温度は面内で最も低い温度となりやすく下流側へ行くほどガス温度も上昇するので燃熱による冷却効果も小さくなり、電池温度が高くなる。従来の場合、原燃料が改質される際の吸熱現象がさらに加わるため入口付近の温度はますます低下することになり、最悪の場合、熔融温度である490℃前後まで下がることも考えられる。逆に下流側では、改質反応が終了しているために大きな吸熱効果は得られず、温度が高くなり、面内の温度分布の不均一が大きくなることは避けられない。それに比べて本実施例では、原燃料と改質ガスの入口が互いに反対側に設けられており、流れ方向は対向する。このため改質後の反応ガスが流れる原燃料通路と隣接する通路において比較的高温となる出口付近が熱源となり、原

燃料入口付近の温度低下は避けられ、管内温度分布をより均一にすることができる。

従来、第7図のようにアノードガス(改質ガス)とカソードガス(酸化剤)が直交して流れる場合、第8図に示すように両者の下流部付近50の温度が最も高くなる場合が多い。そこで、本実施例よりもさらに管内温度分布を均一にする他の実施例を第8図に示す。第8図では原料は図61に対して均一に流入するのではなく、高温域60に流れるガス流量を多くし、改質量を増やし、高温域50における吸熱量を増やすことにより、高温域を局部的に冷却する方法を示している。なお原料ガスの管内流量分布の制御は、第6図の開口部102の開口面積を変えることにより行うことができる。

実施例3

他の実施例は、第6図に示す電極と隔離された分離部をはさんで反対側に位置するもう1つの通路3d内にも改質触媒を配置し、第9図に示すように2つの方向から分散させて原料ガスを導入することもできる。通路3a及び通路3dで改質

示すように、ガスを分散して導入できるのでプロセスガス入口温度を低くしても入口近傍の温度低下を避けることができるので最高温度が低くなり、温度分布均一の結果がある。

実施例4

今まで述べてきた実施例においては、改質反応通路を出るメタンの改質率が温度、圧力、入口ガス組成により定まる平衡値よりも、大きくすることは理論的に不可能である。特に電池圧力が高くなると平衡改質率は低下する傾向にある。これよりさらに改質率を上げるためには、前述の如く、電気化学反応通路3bにも触媒を導入する必要があった。しかし、通路3b内の触媒は電解質が付着しやすい環境におかれているため、劣化しやすい寿命の問題が残る。もう1つの方法はリサイクルを行い、電気化学反応後の水分を多量に含む排ガスを原料ガスと混合させることである。これによりスチーム/カーボン比を高くすることができ、その結果、メタンの平衡改質率も高くなる。しかしながらリサイクルする反応後の排ガス中に

されたガスは、出口マニホールドを通過して、一旦、電池内のガスヘッダーに導入され、その後、電気化学反応を行う通路3bの入口に通ずるマニホールドへ導かれる。一般に改質触媒を設けると流路面積が減少し圧力が増加する。また先の実施例のように一部の流路に集中してガスを流しても圧力が増加し、補助動力が増える。2方向から別々の流路に分岐することにより、この欠点が補える。さらにより大きな効果としては、流路3aと3dは互いに直交するため、そして、それぞれの流路を流れる流量分布が先に述べた開口面積を変えることにより独立に制御できるため、2経の1次元流量分布を組み合わせることにより2次元の流量分布制御が可能であり、このことはより精度よく管内の吸熱分布が制御でき、ひいては、管内温度分布をより均一化することが可能となる。

電極と隔離された2つの通路のうち第6図の通路3dに、カソード側のプロセスガスを流し、カソードプロセスガスが1つのセル内で第10図に示すように対向して流することも可能であり、同様に

は電解質室が含まれており、このため徐々に流路3aに設けられた触媒が劣化することになる。

第11図に、触媒の寿命を出来るだけ長く延ばすことを目的としたリサイクル方式の実施例を示す。通路3aで改質された平衡ガスは、一旦出口マニホールドを通過して電池内のガスヘッダー41に入り、そこで、電池から排出され、再循環された反応ガス207と混合され、もう1つの電極と隔離された通路3dに通ずるマニホールドを通る。通路3dには改質触媒が配置されており、再循環ガス207に含まれる水分の影響により、通路3dを出た改質ガス中に含まれるメタン濃度の平衡値は通路3a出口よりもさらに小さくなる方向に進み、通路3a出口における改質率はさらに高くなる。この改質ガスは通路3d出口に通ずるマニホールドを通り、一旦、ガスヘッダー42に導かれ、そこから反応通路3bに通ずるマニホールドを通過して、第6図の電極9bに導かれる。このように改質反応を2段階に分けて行う本実施例では、少なくとも通路3aの改質触媒はリサイクルの影響を受け

ないため、再循環ガス中に含まれる電解質蒸気による触媒活性低下が避けられる。メタン改質の大半はこの通路3a内で行われ、再循環ガスが循環する通路3dでの改質割合は比較的小さく、従って通路3d内の触媒の負担は通路3a内の触媒に比して比較的小さい。また2つの通路に触媒を配置できるので電池内の触媒量を増やすことができる。以上のことから電解質の触媒に与える影響は小さくなり、触媒全体としての寿命は延びることになる。従来技術では再循環系にガス中の電解質を除去する装置が不可欠となっていたが、本実施例では、そのような装置がなくても、触媒の寿命を延ばすことが可能となる。

実施例5

上記に示した燃料の改質や電池の冷却以外にも電池には非発電時における昇温、降温、あるいは保温といった熱制御もプラント運転上必要となる。本発明による他の実施例として電池本体の熱制御システムの1例を第12図に示す。電池本体40は、先述のように4つの独立した通路3a、3b、3c、

3dを有している。このうち、電極と連絡する通路3b、3cには、それぞれ改質ガス、カソードプロセスガスが流れる。また、原料ガスを改質するための通路は先述のように電極と隔離された通路3aが用いられる。

残る通路3dは電極と隔離された通路であり、熱制御の目的に応じて、種々のガスが流れることになる。まず、冷却用にはカソードプロセスガスライン302の分岐点50からプロセスガスの一部を分岐し、分岐ライン303を通り流量調整弁52により所望されたプロセスガスが通路3dに導入し、通路3cを対向して流れるプロセスガスと合わせて先述した電池冷却を行う。あるいは、別な冷却方法の選択として、これも先述したが、改質反応を利用した吸熱作用による電池の冷却がある。この場合は通路3dにも改質触媒を配置しておく必要がある。原料ガスライン301の分岐点56から分岐された原料ガスの1部が分岐ライン306を通り、流量調整弁54により流量制御され通路3dに導かれ、改質後、電池外へ排出される。あるいは改質ガス

の1部、あるいは全部を分岐ライン305に通し、流量調整バルブ51、57により流量制御を行った後に電気化学反応を行わせるために通路3bに導入することもできる。このように冷却に関して2種類の冷却方法を選択することができることの利点として、電池の負荷、供給ガス、流量、ガス温度などの種々の運転条件において、よりフレキシブルに最適な冷却が行えることである。なお、通路3d内の改質触媒は、カソードプロセスガス導入時には酸化されるため、原料ガスを流す場合には、水を過給して還元する必要があることをこわっておく。また、冷却媒体として、原料ガスやカソードプロセスガス以外の媒体を独立して流すことも可能である。この場合は前記ガスよりも熱容量や熱伝導度の大きい媒体を選べば、冷却ガス量が減らせるため、補助動力が少なくて済みシステムの効率が向上する。

次に、非発電時における電池の昇温、保温といった加熱操作も本システムで行うことができる。すなわち、高温の熱媒体が流れるライン300から、

流量調整弁53により流量制御された熱媒体を必要に応じて、通路3dに流すことにより電池に熱の供給を行うことができる。最も得られやすい熱媒体として、燃焼ガスなどが挙げられる。燃焼ガス中には、電極の活性を低下させる有害物質50xや50yなどが含まれているが、通路3dは電極と隔離された通路となっているため、このような電極に影響を及ぼすガスでも熱媒体として用いられるため、加熱用ヒーターの代用も考えられ、加熱用熱媒体の選択幅が広がること、浄化装置も不要になることと合わせて、システムの構成が簡単となり効率の向上及びコスト低減にもつながる。

〔発明の効果〕

本発明によれば、燃料改質を行う通路への電解質の侵入が防げるため、改質触媒の寿命を向上する効果が得られる。

また、供給ガスを異なる方向から分散させて導入することや、常時反応ガス以外のガスの導入も可能なため、室内温度分布の均一化が図れ、電池の信頼性、寿命、性能などが向上する。

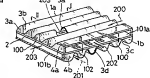
4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の一実施例の流路構造の斜視図、第2、第3図は第1図にマニホールド部を加えた1-1及び1-5縦断面図、第4図は透視側视图、第5図(a)、(b)、第6図(a)、(b)はその縦断面図、第7図(a)～(c)は従来例と本発明の他の実施例の比較説明図、第8図～第9図は本発明の他の実施例におけるガスフロー機構図、第10図(a)～(c)は従来例と本発明の他の実施例の比較説明図、第11図は本発明の他の実施例のガスフロー機構図、第12図は本発明の他の実施例の電池間断を含むガスフローシステム機構図である。

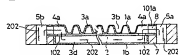
1…成形シート部材、2…ガス分離板(セパレータ板)、3…流路、5、6…マニホールド、8…マニホールド開口部、9…電極、10…電解質板、30…改質触媒、100…端部閉塞部、102…流路開口部、204…アノードガス、205…カソードガス、

(本頁以下余白)

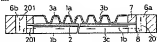
第1図



第2図

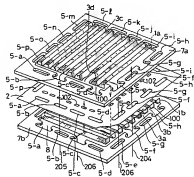


第3図



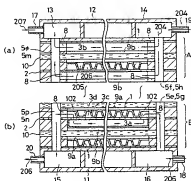
1…成形シート部材 2…ガス分離板 3…流路
3a…改質反応を行う流路(第2の流路通過路)
3b…アノードガス流路(第1の流路通過路)
3c…カソードガス流路(第1の流路通過路)
3d…改質反応を行う流路(第2の流路通過路)
5,6…マニホールド 8…マニホールド開口部 100…端部閉塞部
102…流路開口部

第4図



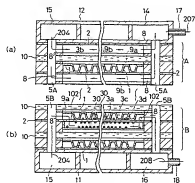
7a…カソード側触媒 7b…アノード側触媒
204…アノードガス 205…カソードガス
206…任意のガス

第5図



9a…カソード 9b…アノード
10…電解質板

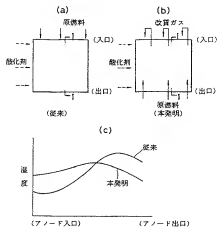
第 6 図



30：改質触媒

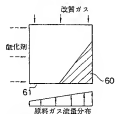
208：還元剤ガス

第 7 図



1-1 面温度分布

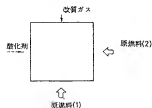
第 8 図



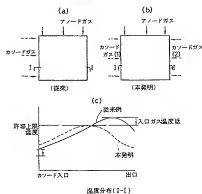
60：高温領域

61：辺

第 9 図



第 10 図

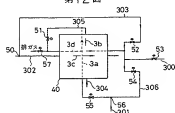


温度分布 (1-1)

第11図



第12図



40…電極本体
42…ガスヘッダー
207…参考ガス
301…燃料ライン

41…ガスヘッダー
50-57…流路開閉弁
300…無制限空気ライン
302…カソードガスライン